



NORGE

(12) **PATENT**

(19) NO

(11) **302748**

(13) B1

(51) Int Cl<sup>6</sup> C 01 B 17/76

## Patentstyret

---

(21) Søknadsnr	905312	(86) Int. inng. dag og søknadsnummer	22.05.89, PCT/DK89/00133
(22) Inng. dag	07.12.90	(85) Videreføringsdag	07.12.90
(24) Løpedag	22.05.89	(30) Prioritet	09.06.88, DK, 3125/88
(41) Alm. tilgj.	16.01.91		
(45) Meddelt dato	20.04.98		

(73) Patenthaver	Haldor Topsøe A/S, Nymøllevej 55, DK-2800 Lyngby, DK
(72) Oppfinner	Peter Schoubye, Hørsholm, DK
(74) Fullmektig	Oslo Patentkontor AS, 0306 Oslo

---

(54) **Benevnelse** **Fremgangsmåte ved fremstilling av svovelsyre**

(56) **Anførte publikasjoner** Ingen

(57) **Sammendrag** Ved kondensering av svovelsyre fra gasser inneholdende svovelsyredamp og vanddamp i overskudd, som eksempelvis kommer fra en kraftstasjon, kan det oppnås en vesentlig nedsettelse av mengden av små dråper av svovelsyre (såkalt syretåke) som unnslipper til omgivelsene, selv i de tilfeller hvor svovelsyreanlegget er forsynt med et aerosolfilter, hvis meget små podekjerner innarbeides i gassen i en mengde på  $10^9$  -  $10^{12}$  faste partikler pr.  $\text{Mm}^3$  pr. 0,1%  $\text{H}_2\text{S}$ -damp i gassen. Podekjernene kan eksempelvis genereres ved forbrenning av hydrokarboner inneholdende flere enn 2 karbonatomer eller ved forbrenning av silikoner eller erholdt fra røk fra en elektrisk lysbue eller fra elektrisk sveising.

Foreliggende oppfinnelse vedrører en fremgangsmåte av den art som er angitt i krav 1's ingress ved fremstilling av svovelsyre ved kondensering av svovelsyredamper fra en gassblanding inneholdende 0,01-10 volum%  $H_2SO_4$ -damp, regnet ut fra forutsetningen av at  $SO_3$  er fullstendig hydratisert, og 0-50 volum% vanndamp, ved direkte eller indirekte avkjøling i et svovelsyretårn.

Ved fremstilling av svovelsyre blir syren i mange tilfeller erholdt i form av damper av  $H_2SO_4$  i blanding med vanndamp. Dette er f.eks. tilfelle ved den viktige svovelsyrefremgangsmåte som består i katalytisk oksydasjon, normalt over en alkalipromotert vanadiumkatalysator av  $SO_2$  til å gi  $SO_3$ , som deretter hydratiseres med vanndamp til å gi svovelsyredamp, som må kondenseres i en kjøleprosess. Denne svovelsyreprosess er viktig, bl.a. i forbindelse med rensing av avgasser for svovel.

Ved kondensering av svovelsyredamper, hvilket kan finne sted ved avkjøling under forskjellige omstendigheter, dannes en såkalt syretåke (svovelsyretåke), dvs. en type aerosol bestående av meget små dråper av svovelsyre i gassblandingen fra hvilken svovelsyre kondenseres, hvilken gassblanding normalt inneholder damp i en større mengde enn den som er nødvendig for fullstendig hydratisering av  $SO_3$  til  $H_2SO_4$ . Det er viktig å forhindre at vesentlige mengder syretåke går tapt til omgivelsene. Ut fra miljømessige hensyn er det maksimale utslipp av svovelsyretåke fastlagt til ca. 40 mg  $H_2SO_4/Nm^3$ , hvilket tilsvarer 9 ppm  $H_2SO_4$ .

Det er kjent å regulere utslippet av syretåke ved å styre kjølemidlets temperatur. Det er således i DK patent 145.457 (US patent 4.348.373) beskrevet en fremgangsmåte ved fremstilling av konsentrert svovelsyre fra gasser inneholdende  $SO_3$  og overskudd av  $H_2O$ . Gassen avkjøles og svovelsyren kondenseres og konsentreres i to trinn i et absorp-

5 sjonstårn inneholdende fyll-legemer. I det nederste trinn føres mategassen oppad motstrøms med den konsentrerte syre, hvorved dennes konsentrasjon øker. I det etterfølgende trinn blir syredampen absorbert i svovelsyre som er resirkulert gjennom laget som inneholder fyll-legemene.

10 Innholdet av svovelsyredamp holdes nede som følge av en spesifikk regulering av temperaturen. Den resirkulerte syre fjernes fra tårnet. Gjenværende syretåke fjernes i et aerosolfilter plassert etter absorpsjonssonen. Filteret er at "lavviskositets"-filter, som arbeider med en lineær hastighet under 1 m/s og med et trykkfall over filteret på 20-30 mbar.

15 Fra DK patentsøknad 1361/82 (GB patent 2.117.368) er det kjent en fremgangsmåte ved fremstilling av svovelsyre hvor svovelsyredamper i gasser inneholdende 0,01-10 %  $H_2SO_4$ -damp og 0-30 % vanddamp kondenseres i vertikale, gassavkjølte syrereristende rør. Tilstedeværelse av store mengder  
20 syretåke i gassen etter kondenseringen unngås i henhold til dette patent ved å holde temperaturforskjellen mellom den svovelsyreinnholdende gass som strømmer oppad og kjølemidlet som strømmer nedad (eventuelt delvis tverrstrøms) innen visse spesifiserte grenser.

25 Fremgangsmåten kjent fra dette patent er forbedret i henhold til DK patentsøknad 2989/88, slik at den er spesielt egnet, men ikke utelukkende, for anvendelse ved kondensering av svovelsyre fra gasser med et lavt innhold av  
30  $H_2SO_4$ -damper. Slike gasser kan stamme fra avgasser og andre industrielle avfallsgasser hvis innhold av  $SO_2$  blir oksydert til  $SO_3$  over en svovelsyrekatalysator og omsatt med damp. Kondensasjonen finner sted i et stort antall rør som alle ved sin topp har et lite filter som forårsaker et trykkfall  
35 som typisk ligger i området 5-10 mbar, og hvor gassen inneholdende svovelsyre strømmer i en oppadrettet retning motstrøms med et gassformig kjølemiddel som føres i en

nedadrettet retning eksternt rundt rørene. En forutsetning for dette filterets evne til å separere syredråper/syretåke (og for å muliggjøre at svovelsyren strømmer nedad gjennom rørene motstrøms med gassen) ned til et restinnhold på den tidligere nevnte mengde på 40 mg/Nm<sup>3</sup> er at temperaturene TA<sub>1</sub> og TA<sub>2</sub> for kjøleluften, henholdsvis til og fra kondensatoren, og temperaturen T<sub>2</sub> for gassen som forlater rørene og filteret tilfredsstillende de følgende tre betingelser.

- 10
- (1)  $TA_2 > T_d - 30 - 10\alpha^\circ\text{C}$
  - (2)  $T_2 < T_2^*^\circ\text{C}$
  - (3)  $T_2 - TA_1 < 90^\circ\text{C}$

15 hvori T<sub>d</sub> er svovelsyrens duggpunkt for mategassen som føres til rørene, α er volumprosentandelen av H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> i denne gass, under antagelse av at SO<sub>3</sub> er fullstendig hydratisert til H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, og T<sub>2</sub>\* er temperaturen ved hvilken damptrykket for H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> er ca. 2 x 10<sup>-6</sup> bar i likevekt med det partielle vann-  
20 damptrykk som hersker ved utløpet av rørenes topp (tilsvarende ca. 2 ppm svovelsyredamp, T<sub>2</sub>\* ligger vanligvis i området 100 - 125°C).

I det følgende er uttrykket "svovelsyretårn" ment å angi et pakket absorpsjonstårn, slik som beskrevet i US patent nr. 4.348.373 (DK patent nr. 145.457) eller et tårn inneholdende rør som beskrevet i en av de ovenfor nevnte publikasjoner.

30 Det har nå overraskende blitt funnet at filtrerbarheten av smådråpene i syretåken er meget avhengig av innholdet av små partikler i gassen før kondenseringen begynner, under ellers like driftsbetingelser. Disse partikler tjener som kjerner rundt hvilke svovelsyre kondenseres, såkalte nukleerings-kjerner eller nukleerings-sporer.

35 Nærmere forklart blir innholdet av syredamp i en gass som utføres til omgivelsene fra et svovelsyretårn nedsatt i

henhold til oppfinnelsen hvis gassene som inneholder svovelsyredamper som skal kondenseres gis et innhold på  $10^9$  -  $10^{12}$  faste partikler pr.  $\text{Nm}^3$  pr. 0,1%  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -damp før gassen føres inn i svovelsyretårnet, regnet utfra forutsetningen av at  $\text{SO}_3$  er fullstendig hydratisert til  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , slik som angitt i krav 1's karakteriserende del. Ytterligere trekk fremgår av kravene 2-15.

Denne prosess er universell og kan anvendes både i industrielle prosesser hvor fremstilling av svovelsyre er hovedhensikten og ved fremstilling av svovelsyre, innbefattende høykonsentrert svovelsyre, som biprodukt ved rensning av industrielle avgasser, eksempelvis avgasser fra kraftstasjoner.

Nukleeringen i henhold til oppfinnelsen kan således utføres under kjøling i et pakket svovelsyretårn i motstrøms med den sirkulerende svovelsyre som kjølemiddel, med andre ord, utnytte fremgangsmåten som er kjent fra DK patent nr. 145.457 (US patent nr. 4.248.373).

Foreliggende fremgangsmåte kan også anvendes under kjøling av gassblandingen inneholdende svovelsyre i i det vesentlige vertikale, eksternt avkjølte rør i hvilke gassblandingen strømmer fra bunnen i en oppadrettet retning i motstrøms med et fortrinnsvis gassformig eksternt kjølemiddel, dvs. i henhold til fremgangsmåten kjent fra GB patent 2.117.368.

Foreliggende oppfinnelse har vært spesiell nyttig i forbindelse med fremgangsmåten kjent fra DK patentsøknad nr. 2929/88 og en fordelaktig utførelsesform er følgelig særpreget ved anvendelse av den ved kondensering av svovelsyredamper, som etter kondensering strømmer ned gjennom rørene som flytende, høykonsentrert svovelsyre, hvilke  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -damper stammer fra gasser inneholdende 0,01 - 10 volum%  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -damp beregnet under den tidligere nevnte forutsetning, og 0 - 50 volum% vanndamp, idet gassen innfø-

res i bunnet ved en temperatur som minst svarer til svovelsyrens duggpunkt, ved trykk- og temperaturbetingelene som hersker i røret og avkjøles under oppstrømningen til utløpstemperaturen  $T_2$ , som er lavere enn temperaturen ved hvilken damptrykket for  $H_2SO_4$  er ca.  $2 \times 10^{-6}$  bar i likevekt med det partielle vann-damptrykk som hersker ved utløpet av rørenes topp, og hvor rørene avkjøles eksternt med et gassformig medium som strømmer i det vesentlige motstrøms med den svovelsyreinnholdende gass, hvorved det gassformige medium oppvarmes fra en innløpstemperatur  $TA_1$  på  $0-50^\circ C$  til en utløpstemperatur  $TA_2$  som tilfredstiller betingelsen

$$TA_2 > T_d - 30 - 10\alpha^\circ C$$

hvor  $T_d$  og  $\alpha$  har den tidligere angitte betydning.

Fremgangsmåten ifølge oppfinnelsen skal beskrives nærmere i den følgende, delvis under henvisning til tegningene, hvor

fig. 1 skjematisk viser et anlegg egnet for å utføre foreliggende fremgangsmåte,

fig. 2 representerer kurver som viser innholdet av syretåke i den utførte gass etter et aerosolfilter og etter tilsetning av forskjellige mengder faste partikler,

fig. 3 viser skjematisk et forsøksapparat, og

fig. 4 viser et filter som anvendes i dette apparat.

Fig. 3 og fig. 4 er identiske med figurene 2 og 3 i DK patentsøknad nr. 2989/88.

Fig. 1 viser et anlegg hvor fremgangsmåten ifølge oppfinnelsen lett kan utføres i forbindelse med rensing av røk fra en kraftstasjonkoker som fyres med svovelinneholdende

kull eller olje. Røken fra kokeren 1 avkjøles i en luftforvarmer 2 og deretter i en trimmekoker 3 til ca. 200°C foran et støvfilter 4, hvori innholdet av flyveaske og støvpartikler i røken separeres til et innhold under 20 mg/Nm<sup>3</sup>, fortrinnsvis til under 5 mg/Nm<sup>3</sup>, ved hjelp av et posefilter.

Blandt de mange forskjellige posefiltertyper er spesielt foretrukket de som inneholder en membran av "Teflon" (polytetrafluoretylen), som holder tilbake alle partikler med en diameter under 0,01 µm. Røken blir deretter oppvarmet i en varmeveksler 5 til ca. 390°C, og kan ved hjelp av direkte oppvarming med en oljebrenner 6 oppvarmes til 420°C i en reaktor hvori ca. 96% av innholdet av SO<sub>2</sub> i gassen omdannes til SO<sub>3</sub> ved hjelp av en alkalipromotert vanadiumkatalysator. Denne katalysator har ytterligere den egenskap at under drift vil den oppfange ca. 95% av det gjenværende støvinnehald i gassen, dette på grunn av at overflaten av katalysatoren er fuktet med en smelte av alkalipyrosulfater. Den SO<sub>3</sub>-innholdende gass blir deretter avkjølt i en varmeveksler 5 til ca. 250°C, hvorved en hoveddel av innholdet av SO<sub>3</sub> i gassen hydratiseres til H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-damp, som deretter kondenseres til flytende svovelsyre i vertikale, luftkjølte glassrør i en svovelsyrekondensator 8 (glassrørtårn) i hvilket gassen avkjøles til 100°C, og samtidig blir kjøleluften oppvarmet fra typisk 20°C til 190°C. Glassrørene har de samme dimensjoner og arbeider under de samme betingelser som simulert i forsøksapparatet vist i fig. 3, som er montert i kjente "tube-sheet"-varmevekslere (se Donald Q. Kern "Process heat transfer" 1950, sidene 127-136), hvori luftstrømmen på utsiden av glassrørene strømmer tverrstrøms i forhold til gassen i rørene og forårsakes av avbøyningsplater i varmeveksleren og føres seks ganger i tverrstrøm i forhold til gassen i røret. På toppen av hvert rør er det montert et dråpefilter for å separere smådråper av svovelsyre, slik som beskrevet i PCT publisasjon WO 89/12024. Filteret 4 og SO<sub>2</sub>-reaktoren 7 vil normalt sikre at antall partikler i gassen er mindre enn det opti-

male for separasjon av svovelsyre i dråpefiltrene, hvilket naturligvis er en forutsetning for optimal separasjon av syresmådråpene ved tilsetning av partikler til gass-strømmen.

5

Henvisningstall 20 angir en blåseanordning som i mange tilfeller fordelaktig kan være plassert på dette sted i anlegget, i andre tilfeller er det forutsatt at den er tilstede et annet sted i anlegget, eksempelvis som en friskluftsvifte til kokeren.

10

I anlegget vist i fig. 1 finner tilsetning av podningspartiklene (nucleating particles) sted ved hjelp av en oljefyrt støttebrenner 6 som har to funksjoner som styres automatisk ved hjelp av en prosess-regnemaskin 9, nemlig å holde temperaturen i gassen som føres til SO<sub>2</sub>-omdanneren ved en fastlagt temperatur (420°C), hvilket oppnås ved å regulere mengden av olje til brenneren, samt å generere en optimal mengde av podepartikler, hvilket finner sted ved samtidig regulering av forholdet luft/olje som føres til brenneren på en slik måte at signalet til prosess-regnemaskinen fra en automatisk arbeidende syretåke-måler 10 i gassen etter svovelsyrekondensatoren viser et minimalt innhold av syretåke i gassen, eller i det minste at innholdet av syretåke ligger under et fastlagt minimum på 10 ppm H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>. Prosess-regnemaskinen utfører reguleringen i henhold til vanlig kjente prinsipper. Hvis det i stedet for oppvarming av gassen før SO<sub>2</sub>-reaktoren med en olje- eller propan-gassfyrt brenner velges å anvende indirekte oppvarming, kan tilsetning av partiklene lett finne sted som røk fra en elektrisk bue eller ved brenning av hydrokarboner, eller ved hjelp av en aerosol av en oppløsning av f.eks. jernsulfat. Tilsetningshastigheten for partiklene reguleres ved hjelp av en reguleringsløyfe som innbefatter et kontinuerlig arbeidende måleinstrument for innholdet av syretåke i gassen etter svovelsyrekondensatoren. Som støvfilter er et posefilter foretrukket, for dette sikrer best at partiklene

15

20

25

30

35

vil være tilstede i underskudd.

Mens driftsanlegget vist i fig. 1 inneholder et meget stort antall rør, eksempelvis er antallet for en kraftstasjon med en kapasitet på 300 MW i en størrelsesorden 60.000 rør, inneholder forsøksanlegget vist i fig. 3 kun ett rør. Dette har kapasitet for å behandle opptil 20 Nm<sub>3</sub>/h gass inneholdende svovelsyre som fremstilles ved å ta inn luft fra det omgivende rom ved hjelp av en blåseanordning 20, oppvarme luften i en elektrisk varmeanordning 22 og blande den med damp og gassformig SO<sub>2</sub> til å gi den ønskede gass-sammensetning. Gassblandingen oppvarmes ytterligere til ca. 420°C i en elektrisk varmeanordning 24, hvoretter den føres gjennom en katalytisk reaktor 26 i hvilken ca 96% av innholdet av SO<sub>2</sub> i gassen oksyderes til å gi SO<sub>3</sub>, ved hjelp av en kjent svovelsyrekatalysator inneholdende vanadium og kalium som aktive komponenter. Deretter avkjøles gassen i en varmeveksler 28 til ca. 250°C (T<sub>1</sub>) før den innføres i en svovelsyrekondensator bestående av ett enkelt glassrør 30 med en lengde på 6 m, en i.d. (indre diameter) på 36 mm og en y.d. (ytre diameter) på 40 mm. I de øvre 5,4 m av glassrørets lengde er dette omgitt av et større rør, 32, gjennom hvilket kjøleluft føres ved hjelp av en vifte 34 og forårsaker at gass-strømmen i røret 30 avkjøles motstrøms med luftstrømmen i det ytre rør. Det ytre rør er isolert med 100 mm mineralull. Kjøleluften kan innføres via et antall ventiler 36, 38, 40 og 42, slik at kjølesonen kan justeres til henholdsvis 5,4 m, 4,96 m, 4,55 m, og 4,05 m. Betingelsene for strømmen av kjøleluft er tilpasset på en slik måte at varmetransmisjonsverdien (hv) ved yttersiden av røret er slik som for et tilsvarende rør i et industrielt anlegg.

Fig. 4 viser én av flere mulige filtertyper for anvendelse i forsøksanlegget. Fig. 4 er identisk med fig. 3 i DK patentsøknad nr. 2989/88, og dette filter er betegnet med filter A. Det består av et sylindrisk glassrør som i det

etterfølgende er betegnet med patron 50, med en indre diameter på 46 mm og en lengde på 200 mm. Filterpatronen 50 har i bunnen en nakke 52 hvis ytre diameter er 40 mm. Ved hjelp av en ytre tett omsluttende "Teflon"-mansjett 54 er den knyttet til glassrøret 30, som har den samme ytre diameter. Trykkfallet over filterpatronen måles ved hjelp av et forgrenet rør 56 som er ført gjennom mansjettten. Et filtermedium 58 er plassert i filterpartonen og består av filamenter av en fluorkarbonpolymer og har en tykkelse på 0,3 mm og er strikket slik at den gir en bane med en bredde på ca. 150 mm, hvor banen er sammenrullet til å passe inn i patronen. Rullen har en diameter tilsvarende filterpatronens indre diameter. Filtermaterialet utgjør ca. 7% av rullens volum. Når smådråpene av svovelsyre tilstede i gassen beveges opp gjennom rullen, vil dråpene oppfanges og agglomerere til å danne større dråper som strømmer nedad i motstrøms med gassen og passere videre ned gjennom glassrøret.

Flere forsøksresultater er gjengitt i DK patentsøknad nr. 2.989/88, delvis ved hjelp av tabeller. En del av tabell 1 i den nevnte søknad er gjengitt i det etterfølgende som tabell 1. I denne er  $T_1$  gassens temperatur ved innløpet til rørene,  $m/s$  angir gasshastigheten gjennom filteret, uttrykt som meter i sekundet, og  $\Delta p$  er trykkfallet over filteret, uttrykt i mbar.  $T_a$ ,  $TA_1$  og  $TA_2$  har de tidligere gitte betydninger.

Ved gjentakelse av disse forsøk ble det overraskende funnet at under ellers uendrede betingelser ved driften kunne man måle et betydelig tap i innholdet av syretåke etter filteret når røk fra en sigarett, gnister fra en slipesten eller røk fra elektrosveising etc. ble tilsatt luften som ble tilført blåseren 20 (fig. 3) eller når røk fra forbrenning av hydrokarboner inneholdende mer enn 2 karbonatomer i molekylet ble tilsatt, forutsatt at luft/brennstoff-forholdet ble justert slik at flammen ble svakt lysende. Når

større mengder røk ble tilsatt, ville innholdet av syredamp etter filteret igjen øke sterkt. Syredampinnholdet etter filteret i forsøkene rapportert i tabell 1 kunne også sterkt påvirkes ved kun å endre belastningen på blåseanordningen 20 anvendt i disse forsøk. Blåseanordningen var en vanlig husholdningsstøvsuger av typen "Nilfisk", utstyrt med en børstemotor som ble avkjølt av luften som passerte gjennom støv- sugeren.

10 Innholdet av smådråper av svovelsyre i gassen etter filtrene falt betydelig når belastningen på motoren ble øket ved å strupe en ventil innført i luftstrømmen før eller etter støvsugeren. Ved sterkere belastning vil børstene gnistre mer, hvorved en øket mengde av partikler av kull og metall avgis til luften fra det elektriske kontaktpunkt med motorens rotor. Disse observasjoner er beskrevet nærmere i det etterfølgende.

20 Bestemmelse av syretåke ble utført ved hjelp av et kontinuerlig arbeidende fotometrisk aerosolmeter som ofte ble kalibrert ved kjemisk bestemmelse av innholdet av  $H_2SO_4$  i gassen, idet bestemmelsene ble utført i henhold til fremgangsmåten beskrevet i EPA-direktiv EPA-600/3-84-056 (April 1984). Driftsbetingelsene når det gjelder strømming, temperatur, avkjølingssonens lengde og trykkfall ble valgt fra tabell 1 og gjentatt med varierende mengder podende partikler.

30 Ved å gjenta forsøk 1-1 ble de følgende innhold av  $H_2SO_4$  i gassen etter filteret A funnet.

- a) 6 - 10 ppm ved anvendelse av ren tilførselsluft og den samme motorbelastning som i det opprinnelige forsøk,
- b) innholdet av syretåke falt til ca. 1 ppm ved å øke belastningen til en verdi nær belastningsgrensen for motoren, hvoretter syretåken igjen synes å tilta ved overbelastning av motoren,

- 5 c) 50 - 100 ppm når ren luft ble innført når det i stedet for ovenfor nevnte støvsuger ble anvendt en blåseanordning hvor luften ikke kom i kontakt med motoren. Rensing av innløpsluften med et posefilter endret ikke innholdet av syretåke vesentlig.

I de følgende forsøk ble det anvendt en blåseanordning hvor luften ikke kom i kontakt med motoren.

- 10 d) Tilsetning av noen få  $\text{cm}^3/\text{s}$  av sveiserøk fra elektro-sveising med eksempelvis jernelektroder til innmatningsgassen ved  $14 \text{ Nm}^3/\text{h}$  forårsaket at syretåken etter filteret på ny falt til 0-1 ppm  $\text{H}_2\text{SO}_4$ . Større mengder sveiserøk øket imidlertid syretåken drastisk. Ved 15 tilsetning av ca.  $100 \text{ cm}^3/\text{s}$  sveiserøk steg innholdet av syretåke til nesten 1000 ppm, hvilket betyr at nesten hele innholdet av  $\text{H}_2\text{SO}_4$  i innløpsgassen i røret passer-te gjennom aerosolfilteret A.
- 20 En annen utførelsesform av filteret, betegnet B1, med det samme trykkfall som for filteret A, var ikke mere effektivt enn filteret A, mens et filter B2 (A, B1 og B2 refererer til filterne anvendt i DK søknad 2989/88) fjernet syretåke ned til 50-100 ppm etter filteret ved overdosering av sveiserøk.
- 25 e) Syretåken forsvant også ned til under 1 ppm  $\text{H}_2\text{SO}_4$  når det til mategasen ble tilsatt en aerosol av jernsulfatpartikler, fremstilt fra en aerosol i luft av dråper av en 20% oppløsning av jern(II)sulfat som ble atomisert ved hjelp av trykkluft, hvoretter vanninnholdet i dråpene ble fordampet ved  $300^\circ\text{C}$  før faststoffresten ble tilsatt gassen. Det var nødvendig å 30 atomisere  $3-10 \text{ cm}^3/\text{min}$  av oppløsningen av jernsulfat for å oppnå optimal fjerning av syretåken.
- 35 f) Tilsetning av røk fra forbrenning av dieselolje i en oljebrenner til gassen før  $\text{SO}_2$ -reaktoren ga effekten som er vist i fig. 2, på innholdet av syretåke etter aerosolfilteret. Tilsetning av ca. 5% oljerøk i gassen

førte til at kondensatorrøret nedsatte syretåken til 0-1 ppm, mens tilsetning av større mengder oljerøk forårsaket at innholdet av syretåke etter filteret steg til flere hundre ppm  $H_2SO_4$ . Ved å senke overskuddet av luft i flammen slik at denne ble svakt gul, dog uten vesentlig soting, ble mengden av oljerøk (den stiplede linje i fig. 2) som var nødvendig for å nedsette innholdet av syretåke til et minimum på 0-1 ppm, senket. Dette indikerer at meget små kullpartikler i røken virker som podelpartikler og at partiklene fullstendig eller delvis passerer gjennom  $SO_2$ -reaktoren før den katalytiske oksydasjon av  $SO_2$  uten å forbrennes.

g) Røk fra forbrenning av propan og butan hadde i det vesentlige den samme effekt på syretåke som røk fra brenning av olje.

Røk fra forbrenning av etan hadde en svakere effekt og var kun aktiv ved luftunderskudd. Røk fra forbrenning av metan hadde ingen effekt på syretåken, ikke engang ved luftunderskudd, trolig på grunn av at metanflammen ikke kunne bringes til å danne karbonpartikler ved dette forsøk.

h) Innføring av et meget effektivt posefilter med en "Teflon"-membran, som holdt tilbake alle partikler med en størrelse over  $0,01 \mu m$ , i luftstrømmen før  $SO_2$ -reaktoren, ga en konstant mengde  $H_2SO_4$  etter aerosolfilteret og 50-100 ppm  $H_2SO_4$ , uavhengig av hvor meget luft som ble tilført posefilteret fra en gnistrende børstemotor, sveiserøk eller røk erholdt ved forbrenning av hydrokarboner, slik som beskrevet under f) og g). Dette viser at partiklene og andre parametere i forbindelse med de ovenfor rapporterte forsøk forårsaker effekten vist på innholdet av  $H_2SO_4$  i gassen etter aerosolfilteret.

I andre forsøk som viser gjentagelse av driftsbetingelsene vist i tabellene 1, 2 og 3 i DK 2989/88, ble det funnet at under slike betingelser må man iaktta de deri fastlagte

betingelser (1), (2) og (3), men de kan ikke direkte overføres til fremgangsmåten kjent fra eksempelvis DK 145.457, hvori kjølemidlet er kondensert svovelsyre.

5 Tilsetning av partikler til gassen endrer kun bredden av  
temperaturområdet og det minimale innhold av  $H_2SO_4$  som kan  
erholdes etter aerosolfilteret. Dette skyldes det faktum at  
tilstedeværelse av partikler i mategassen, enten i en for  
10 høy eller lav mengde, forårsaker en innsnevring av tempe-  
raturområdet og øker det minimale innhold av  $H_2SO_4$  som kan  
erholdes i filteret og/eller en økning av trykkfallet over  
filteret som er nødvendig for å oppnå et visst minimalt  
innhold av  $H_2SO_4$ . Det er også funnet at fjerning av syredamp  
er mest følsom overfor variasjoner i partikkelinnholdet i  
15 gassen ved konsentrasjoner av  $H_2SO_4$  under 0,5% i mategassen,  
og at den optimale partikkelkonsentrasjon øker nesten  
proposjonalt med  $H_2SO_4$ -konsentrasjonen opptil ca. 0,5%  
 $H_2SO_4$  i mategassen. Ved høyere konsentrasjoner av  $H_2SO_4$  synes  
det som om den forøkning av konsentrasjonen av faststoff-  
20 partiklene som er nødvendig for å minimalisere syretåken  
nærmer seg null. Ved 6%  $H_2SO_4$  i mategassen kan effekten av  
partikkelkonsentrasjonen fremdeles observeres, og det synes  
som om den har en optimal konsentrasjon på 2-10 ganger den  
optimale partikkelkonsentrasjon ved 0,5%  $H_2SO_4$ . Det er  
25 observert at for 6%  $H_2SO_4$  og med en innmatningsgass-strøm  
under  $11 \text{ Nm}^3/\text{h}$  pr. glassrør (med en indre diameter på 36 mm)  
og optimale temperaturbetingelser og optimalt innhold av  
partikler, er det mulig å oppnå mindre enn 10 ppm  $H_2SO_4$  i  
utløpsgassen fra rørene, uten filtrering av gassen inn i  
30 eller etter røret.

I de hittil utførte forsøk har det ikke vært mulig å foreta  
absolutte målinger av mengden eller størrelsen av partik-  
lene tilsatt under de beskrevne forsøk. Innholdet av par-  
35 tikler i den optimale røk dannet ved forbrenning av hydro-  
karboner ga ingen eller kun en svak synlig tåkethet i  
røken, mens aktiv sveising eller sigaretttrøk er blåaktig,

hvilket indikerer at partiklene må være mindre enn ca. 0,6  $\mu\text{m}$ . "Teflon"-membranfilteret nevnt under h) fjerner i henhold til fabrikanten partikler til ned under 0,01  $\mu\text{m}$ , men forsøk på å studere partikler fra oljerøk og sveiserøk oppfanget i et filter var ikke vellykket, sannsynligvis fordi partiklene penetrerte inn i filteret. Imidlertid kan man estimere den optimale konsentrasjon av partikler på basis av de følgende vurderinger av partiklenes virkning:

Under kondensering av svovelsyre i rørene vil  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -dampen i gassfilmen på rørveggene underkjøles. For tilfelle av en genuin filmkondensering vil syredampen diffundere gjennom denne underkjølte gassfilm og kondensere på veggene. Svovelsyredamp kan antageligvis (på grunn av svovelsyrens lave overflatespenning) ikke underkjøles mer enn 10-30°C under duggpunktet før spontan kjernedannelse av svovelsyredråper finner sted i den underkjølte film. Den underkjølte syredamp fortsetter å kondensere på disse dråper, og når disse passerer opp gjennom røret vil de vokse i størrelse, slik at de enten kastes ut på rørveggen eller lett kan fjernes av et grovt dråpefilter i toppen av røret. Dette forutsatt at det ikke dannes for mange dråper i forhold til mengden av syredamp som er tilgjengelig for vekst av dråpene. En øket temperaturforskjell mellom gassen i rørene og kjølemidlet på den andre side av rørveggen forårsaker en forøket underkjøling av filmen, og derved et øket antall smådråper, dette forårsaker, spesielt ved lave konsentrasjoner av  $\text{H}_2\text{SO}_4$  i mategassen, at dråpene ikke når en størrelse på minst 2  $\mu\text{m}$ , hvilket er nødvendig for å tillate at dråpene kan separeres i dråpefiltrene under et samtidig trykkfall på under 10 mbar. Det er vanskelig å kontrollere denne spontane kjernedannelse i gassfasen, og den innbefatter alvorlige begrensninger i prosessens drift, disse begrensninger unngås ved kontrollert tilsetning av partikler til mategassen, hvilke partikler virker som "pode"-kjerner til nøyaktig å gi det optimale antall smådråper av svovelsyre. Når det er for mange partikler til

stede, vil det dannes for mange dråper, hvorved det dannes en vanskelig filtrerbar syretåke. På den annen side, hvis for små partikler er til stede, vil overmetningen/underkjølingen være for høy og forårsake spontan kjernedannelse.

5

Det synes ikke å være noen begrensning med hensyn til den kjemiske sammensetning av de faste partikler, eller med hensyn til deres størrelse, for at det er mulig for dem å virke som "pode"-kjerner. Imidlertid bør de være så små som mulig for å gjøre dem i stand til å passere for eksempel en katalytisk reaktor for oksydasjon av  $\text{SO}_2$ , og for ikke å forårsake noen påvisbar forurensning av den fremstilte svovelsyre.

10

15

Basert på den antagelse av hver partikkel danner én syredråpe kan det lett beregnes ut fra den etterfølgende formel at det eksempelvis er nødvendig med  $2,6 \times 10^{11}$  partikler/ $\text{Nm}^3$  for å kondensere 0,1%  $\text{H}_2\text{SO}_4$  i innmatningsgassen i form av smådråper av svovelsyre med en størrelse på 3  $\mu\text{m}$ . Dråpene separeres i filteret ved en konsentrasjon på 75% svovelsyre og en densitet på 1,6  $\text{g}/\text{cm}^3$ . Med hensyn til størrelsesorden, så er dette i overensstemmelse med forsøk d) gjengitt ovenfor og utført med sveiserøk. Den innførte sveiserøk inneholdt ca. 1 g jernoksyd pr.  $\text{Nm}^3$ , trolig med en midlere diameter på 0,1  $\mu\text{m}$ . Følgelig inneholdt røken ca.  $6 \times 10^{14}$  partikler pr.  $\text{Nm}^3$ . Dette tilsvarer en tilsetning av

20

25

ca. 1,6  $\text{cm}^3$  sveiserøk pr. sekund for å oppnå  $2,6 \times 10^{11}$  partikler/ $\text{Nm}^3$  i de 14  $\text{Nm}^3/\text{h}$  mategass til røret. Til tross for de store usikkerheter ved slike beregninger er det i overensstemmelse med det som er fastlagt eksperimentelt. I det minste kan det konkluderes med en stor grad av sikkerhet at for optimal separasjon av smådråper av svovelsyre bør det tilsettes slik at det er  $10^9 - 10^{12}$  partikler tilstede pr.  $\text{Nm}^3$  mategass til rørene pr. 0,1%  $\text{H}_2\text{SO}_4$ -damp i innmatningsgassen. Det er viktig for renheten av den kondenserte svovelsyre at podepartiklene er små. For eksempel vil  $2,6 \times 10^{11}$  partikler med en størrelse på 0,1  $\mu\text{m}$

35

30

pr. 0,1%  $H_2SO_4$  i gassen gi et innhold av 80 ppm "jernoksyd" i den kondenserte svovelsyre, mens partikler med en størrelse på 0,05  $\mu m$  ville gi 10 ppm i syren.

5 Ifølge en foretrukket utførelsesform av oppfinnelsen blir gassblandingen avkjølt i i det vesentlige vertikale, eksternt avkjølte rør, hvori mategassen strømmer oppad fra bunnen i motstrøm med et eksternt kjølemiddel, som fortrinnsvis er gassformig.

10 Passende er det montert nær eller ved den øvre topp av hvert rør en gasstett forbindelse med dette, samt midler for å separere dråper av svovelsyre tilstede i gassen. Disse midler bør være anordnet slik at de sikrer at dråpene  
15 strømmer tilbake ned gjennom røret.

Forholdet mellom:  $n$  = antall partikler eller dråper pr.  $Nm^3$  av gassen,  $c$  = innhold av partikler eller dråper i gassen uttrykt som  $g/Nm^3$ ,  $\sigma$  = densiteten for partiklene eller  
20 dråpene uttrykt i  $g/cm^3$ , og  $d$  = diameteren for partiklene eller dråpene uttrykt i  $cm$  ( $1\text{ cm} = 10.000\ \mu m$ ), er

$$(4) \quad n = 6c / (\sigma \pi d^3) \quad \text{antall}/Nm^3$$

25 Konsentrasjonen  $c$  av svovelsyre dråper i gassen beregnes fra uttrykket:

$$(5) \quad c(\text{svovelsyre dråper}) = 4380 \times \alpha / \beta \text{ g dråper}/Nm^3$$

30 hvor  $\alpha$  er volum%  $H_2SO_4$ -damp tilsvarende  $c$ , forutsatt at alle dråper var fordampet, og  $\beta$  er vektprosenten av  $H_2SO_4$  i dråpene ( $\beta$  er typisk 75 vekt%  $H_2SO_4$ ).

35 For å unngå at gassen under kondenseringen inneholder et for stort antall partikler er det mulig å rense gassen for dens innhold av faste partikler før tilsetning av de faste partikler slik som beskrevet, fortrinnsvis ved hjelp av et

posefilter.

I praksis er det velegnet at man i henhold til oppfinnelsen tilsetter de faste partikler til gass-strømmen inneholdende SO<sub>2</sub> og et støkiometrisk overskudd av H<sub>2</sub>O, og deretter fører gass-strømmen med denne blanding gjennom et lag av en svovelsyrekatalysator ved en temperatur i området 360-500°C for oksydering av SO<sub>2</sub> til SO<sub>3</sub>, som hydratiseres under påvirkning av vanndampen, og om ønsket avkjøler gass-strømmen til 0-200°C over svovelsyrens duggpunkt før gassen innmattes til svovelsyretårnet.

Det er passende at partiklene tilsettes ved tilblending av røk erholdt ved forbrenning av hydrokarboner som fortrinnsvis inneholder 2 karbonatomer pr. molekyl, enten blir luft/brennstoff-forholdet  $\lambda$  for brenneren eller den tilsatte mengde av hydrokarboner blir regulert ved hjelp av en automatisk reguleringsløyfe inneholdende en analysator for å bestemme innholdet av svovelsyre dråper i gassen etter at denne har forlatt svovelsyretårnet eller midlene for å separere smådråper av svovelsyre, idet signalene fra analysatoren kontinuerlig justerer og korrigerer  $\lambda$  eller den tilsatte mengde røk, slik at det sikres at innholdet av svovelsyre dråper i gassen blir så lite som mulig og fortrinnsvis under 10 ppm H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> i avløpsgassen.

Når røkgassen fra brenneren inneholder en høy konsentrasjon av partikler med en størrelse under 1  $\mu$ m, hvilket ofte er tilfelle når det fyres med kullstøv, er det også ifølge oppfinnelsen mulig å gi gassen som føres til svovelsyrekondensatoren det ønskede innhold av podningspartikler ved å kontrollere antallet av små partikler fra avgassen på følgende måte: Den askeinnholdende avgass fra kokeren deles inn i to strømmer, hvor den ene normalt er hovedstrømmen og fra hvilken alt eller nesten alt av partiklene fjernes i et effektivt posefilter, eksempelvis i et posefilter forsynt med "Teflon"-membraner, og en andre strøm, som normalt er

en mindre strøm og som reguleres på den ovenfor angitte måte, og som føres forbi filteret og deretter blandes med hovedstrømmen før innføring av denne til svovelsyrekon-

5 med den første strøm før innføring av denne i SO<sub>2</sub>-reaktoren, hvori gassens innhold av SO<sub>2</sub> oksyderes til å gi SO<sub>3</sub>, samt ytterligere for å befri den mindre strøm for innholdet av grove partikler over 1 μm, eksempelvis i en sykklon eller et lite elektrostatisk filter, fordi de grove partikler vil

10 avsette seg i SO<sub>2</sub>-reaktoren og vil også forurense den kondenserte svovelsyre uten å bidra vesentlig til kjernedannelse.

Ytterligere kan det være fordelaktig å tilføre partiklene i form av røk fra metall eller metalloksyder dannet i en elektrisk lysbue, hvor mengden av de tilsatte partikler pr. tidsenhet reguleres på en slik måte at det oppnås et minimalt innhold av smådråper av svovelsyre etter at gassen har forlatt røret eller har forlatt midlene for separasjon av smådråper av svovelsyre.

15

20

Det er funnet å være spesielt velegnet å tilsette partikler erholdt ved forbrenning av silikonoljer i blanding med et hydrokarbonbrennstoff-fluidum (med fluidum menes enten

25 væske eller gass) i en brenner på en slik måte at røken fra denne inneholder partikler av SiO<sub>2</sub>. Denne røk blandes med avgassen før den innføres i svovelsyretårnet, og fortrinnsvis mellom støvfilteret 4 og blåseanordningen 20 i fig. 1. Ved forbrenning på denne måte av dieselolje blandet med

30 0,05 - 0,5 vekt% silikonolje, eller ved blanding av damper av siloksaner med et damptrykk over 0,01 mbar inn i forbrenningsluften som føres til brenneren, er det kun nødvendig å tilsette ca.  $4 \times 10^{-8}$  g SiO<sub>2</sub> pr. Nm<sup>3</sup> avgass inneholdende 0,1% H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-damp for å oppnå en optimal separasjon av syretåke. Dette tilsvarer en diameter på ca. 50 Å (Ångström-enheter) for partiklene av SiO<sub>2</sub>.

35

Tabell 1

Forsøk med mategass inneholdende 1000 ppm  $\text{H}_2\text{SO}_4$  + 7%  $\text{H}_2\text{O}$ .  
 $T_d = 185^\circ\text{C}$ .  $TA_2 > 155^\circ\text{C}$ . Duggpunkt for 2 ppm  $\text{H}_2\text{SO}_4$  og 7%  
 $\text{H}_2\text{O} = 109^\circ\text{C}$ .

Forsøk nr.	Matestrøm $\text{Nm}^3/\text{h}$	Kjølesone m	$T_1$ °C	$T_2$ °C	$TA_1$ °C	$TA_2$ °C	ppm $\text{H}_2\text{SO}_4$ før filter	ppm $\text{H}_2\text{SO}_4$ etter filter	m/s	$\Delta p$
1-1	14	5.4	250	100	20	194	600	8	3.2	8
1-2	14	4.95	250	100	20	184	600	8	3.2	8
1-3	14	4.5	250	100	20	170	700	10	3.2	8
1-4	14	4.05	250	100	20	151	700	40	3.2	8
1-5	14	4.05	250	95	20	138	700	200	3.2	8
1-6	14	4.05	250	90	20	124	800	400	3.1	8
1-7	14	5.4	230	70	20	150	600	30	2.9	7
1-8	14	4.5	250	70	20	145	700	100	2.9	7
1-10	18	5.4	250	100	20	173	900	6	4.1	12
1-11	9	4.5	250	100	20	198	150	10	2.05	4
1-12	9	4.05	250	100	20	193	200	12	2.05	4
1-13	9	4.05	250	100	20	193	200	5	2.05	8
1-14	14	5.4	250	112	50	188	600	20	3.3	9
1-15	14	5.4	250	112	20	205	700	15	3.3	9
1-16	14	5.4	280	100	20	200	700	8	3.2	8
1-17	14	5.4	250	100	10	201	700	10	3.2	8
1-18	14	5.4	250	100	0	205	800	20	3.2	8
1-19	14	5.4	250	80	0	177	700	10	3.0	7
1-21	14	5.4	250	112	50	190	600	5	3.3	6
1-22	14	5.4	270	125	50	200	600	15	3.4	6
1-23	14	5.4	270	112	20	220		10	3.3	6

Industriell utnyttelse av oppfinnelsen

5 Det er ventet at oppfinnelsen vil være av industriell  
betydning, spesielt for fjerning av svoveldioksyd fra  
røsteprosesser og fra avgasser fra kraftanlegg, spesielt  
middels store og store kraftanlegg, og vil være meget  
effektiv, slik at nesten ingen syretåke vil unnslippe til  
10 atmosfæren. Oppfinnelsen vil således bidra meget til å  
nedsette luftforurensninger i de industrielle områder.

15

20

25

30

35

## P a t e n t k r a v

1. Fremgangsmåte ved fremstilling av svovelsyre ved å føre  
5 en gassblanding inneholdende 0,01-10 volum%  $H_2SO_4$ -damp,  
regnet på basis av at  $SO_3$  er fullt ut hydratisert, og 0-50  
volum% vanddamp til et svovelsyretårn med resirkulerende  
svovelsyre som kjølemiddel, som føres i motstrøm i forhold  
10 til gassen i i det vesentlige vertikale, eksternt avkjølte  
rør hvori gassblandingen strømmer opp fra bunnen i oppad-  
rettet retning i motstrøm med et eksternt gassformig kjøle-  
middel, og å kondensere svovelsyredamper fra gassblandingen  
ved direkte eller indirekte avkjøling i svovelsyretårnet,  
k a r a k t e r i s e r t v e d at gassblandingen  
15 tilsettes  $10^9$  til  $10^{12}$  faste partikler pr.  $Nm^3$  pr. 0,1%  $H_2SO_4$ -  
damp i gassen ved dens innførsel i tårnet, beregnet ut fra  
den forutsetning at  $SO_3$  på dette sted er fullstendig  
hydratisert til  $H_2SO_4$ .

20 2. Fremgangsmåte ifølge krav 1,  
k a r a k t e r i s e r t v e d at gassen innføres ved  
bunnen ved en temperatur som minst er ved svovelsyrens  
duggpunkt under de trykk- og temperaturbetingelser som  
hersker i røret, og hvor innmatningsgassen under sin oppad-  
25 rettede strømming avkjøles til en utløpstemperatur  $T_2$  som er  
lavere enn den temperatur ved hvilken damptrykket for  $H_2SO_4$   
er ca.  $2 \times 10^{-6}$  bar i likevekt med vanddampens partialtrykk  
i utløpet av rørets topp, og hvor rørene avkjøles eksternt  
med et gassformig medium som strømmer hovedsakelig mot-  
30 strøms med den svovelsyreinnholdende gass, hvilket gass-  
formig medium derved oppvarmes fra en innløpstemperatur  $TA_1$   
på 0-50°C til en utløpstemperatur  $TA_2$  som tilfredsstill  
betingelsen

$$TA_2 > T_d - 30 - 10\alpha^\circ C,$$

35 hvor  $T_d$  er svovelsyrens duggpunkt i grader Celsius for  
gassen som føres til rørene, og  $\alpha$  er volum% av svovelsyre-

damp, beregnet under forutsetning av at  $\text{SO}_3$  i gassen er fullstendig hydratisert til  $\text{H}_2\text{SO}_4$ .

3. Fremgangsmåte ifølge krav 2,

5 k a r a k t e r i s e r t v e d at det anvendes rør hvor det i eller nær toppen av hvert rør via en gasstett forbindelse er montert midler for å separere dråper av svovelsyre tilstede i gassen, hvilke dråper strømmer tilbake fra midlene og ned gjennom røret.

10

4. Fremgangsmåte ifølge hvilket som helst av de foregående krav, k a r a k t e r i s e r t v e d at det tilsettes partikler med en diameter mindre enn  $1\mu\text{m}$ .

15

5. Fremgangsmåte ifølge krav 4,

k a r a k t e r i s e r t v e d at det tilsettes partikler med en diameter på  $0,002 - 0,1 \mu\text{m}$ .

20

6. Fremgangsmåte ifølge hvilket som helst av de foregående krav, k a r a k t e r i s e r t v e d å tilsette de faste partikler til en mategass-strøm inneholdende  $\text{SO}_2$  og et støkiometrisk overskudd av  $\text{H}_2\text{O}$ , hvorefter gassblandingen føres gjennom et lag av en svovelsyrekatalysator med en temperatur på  $360-500^\circ\text{C}$  for å oksydere  $\text{SO}_2$  til  $\text{SO}_3$ , som  
25 deretter hydratiserer under påvirkning av vanndampen.

25

7. Fremgangsmåte ifølge krav 6,

k a r a k t e r i s e r t v e d at gass-strømmen avkjøles til en temperatur i området  $0-200^\circ\text{C}$  over svovelsyrens duggpunkt før dampen innføres i svovelsyretårnet.

30

8. Fremgangsmåte ifølge hvilket som helst av de foregående krav, k a r a k t e r i s e r t v e d at det til gassen tilsettes partikler erholdt ved å tilsette røk fra forbrenning av hydrokarboner, og hvor luft/brennstoff-forholdet i brenneren kontinuerlig justeres ved hjelp av en  
35 automatisk reguleringsløyfe inneholdende en analysator for

å måle innholdet av svovelsyredråper i gassen etter at denne har forlatt svovelsyretårnet eller midlene for å separere svovelsyredråpene, idet signalene fra analysatoren kontinuerlig justerer og korrigerer luft/brennstoff-forholdet  $\lambda$  for å sikre at innholdet av svovelsyredråper i gassen blir så lav som mulig.

9. Fremgangsmåte ifølge kravene 1-8,

k a r a k t e r i s e r t v e d at partiklene som tilføres innmatningsgassen tilveiebringes ved å tilføre røk fra forbrenning av hydrokarboner, idet mengden av røk fra forbrenningen av hydrokarboner som tilsettes, justeres kontinuerlig ved hjelp av en automatisk reguleringsløyfe som inneholder en analysator for måling av innholdet av svovelsyredråper i gassen etter at denne har forlatt svovelsyretårnet eller midlene for å separere svovelsyredråper, idet signalene fra analysatoren kontinuerlig justerer og korrigerer mengden av røk som tilføres for å sikre at gassens innhold av svovelsyredråper blir så lavt som mulig.

10. Fremgangsmåte ifølge krav 8 eller 9,

k a r a k t e r i s e r t v e d at det anvendes røk fra forbrenning av hydrokarboner inneholdende minst 2 karbonatomer pr. molekyl.

11. Fremgangsmåte ifølge hvilket som helst av kravene 1-6, k a r a k t e r i s e r t v e d at partiklene tilsettes i form av røk fra metall eller metalloksyder generert i en elektrisk lysbue, idet mengden av partikler tilsatt pr. tidsenhet reguleres på en slik måte at det erholdes et minimalt innhold av dråper av svovelsyre etter at gassen har forlatt røret eller midlene til separering av smådråper av svovelsyre.

12. Fremgangsmåte ifølge hvilket som helst av kravene 8-11, k a r a k t e r i s e r t v e d at den automa-

tiske reguleringsløyfe innstilles slik at avløpsgassens innhold av svovelsyre-dråper er under 10 ppm  $H_2SO_4$ .

5 13. Fremgangsmåte ifølge hvilket som helst av kravene 1-6, k a r a k t e r i s e r t v e d at partiklene tilsettes i form av en aerosol av en oppløsning av et metallsalt eller en suspensjon av partikler, idet væsken som er tilstede i aerosolen avdampes før aerosolen når svovelsyre-tårnet.

10 14. Fremgangsmåte ifølge krav 6, hvor innmatningsgassen som føres til katalytisk oksydasjon av  $SO_2$  er en strøm av støvinnholdende avgass erholdt ved forbrenning av fossilt brennstoff, k a r a k t e r i s e r t v e d at

15 (i) gass-strømmen før den når katalysatorsjiktet eller mellom katalysatorsjiktet og svovelsyrekondensatoren deles i to strømmer, hvor det fra den ene strøm fjernes hovedsagelig alle partikler, og fra den andre fjernes mesteparten av patiklene med en diameter over  $0,5 \mu m$ , og

20 ii) disse strømmer forenes før de når svovelsyrekondensatoren.

25 15. Fremgangsmåte ifølge hvilket som helst av kravene 1-6, k a r a k t e r i s e r t v e d at partiklene tilveiebringes ved å brenne sammen med et brennstoff-fluidum en silikoninnholdende bestanddel valgt fra gruppen omfattende silikonoljer og siloksaner, hvoretter røk dannet ved forbrenning av den silikoninnholdende bestanddel blandes med den svovelinnholdende innmatningsgass.

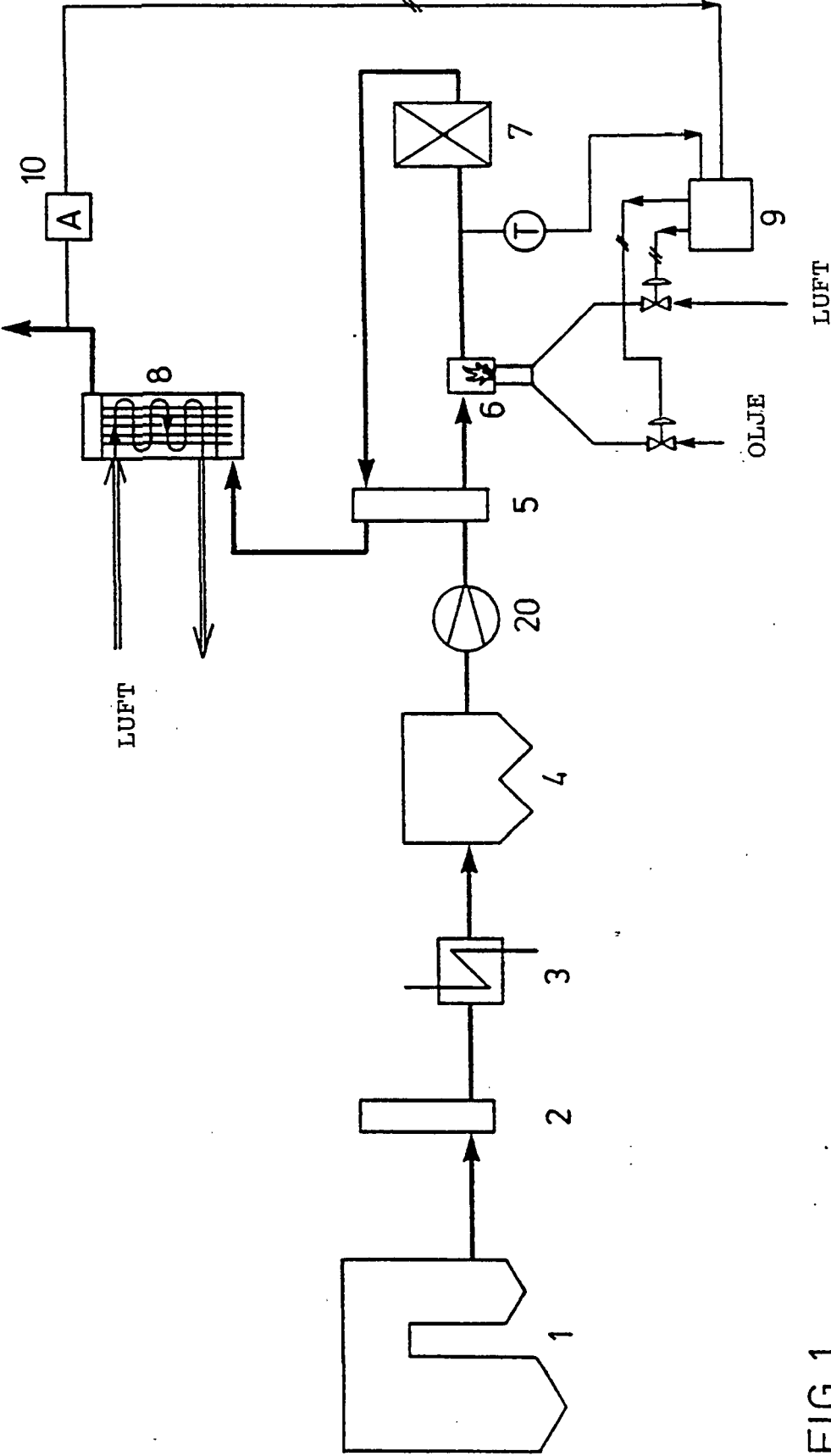


FIG.1

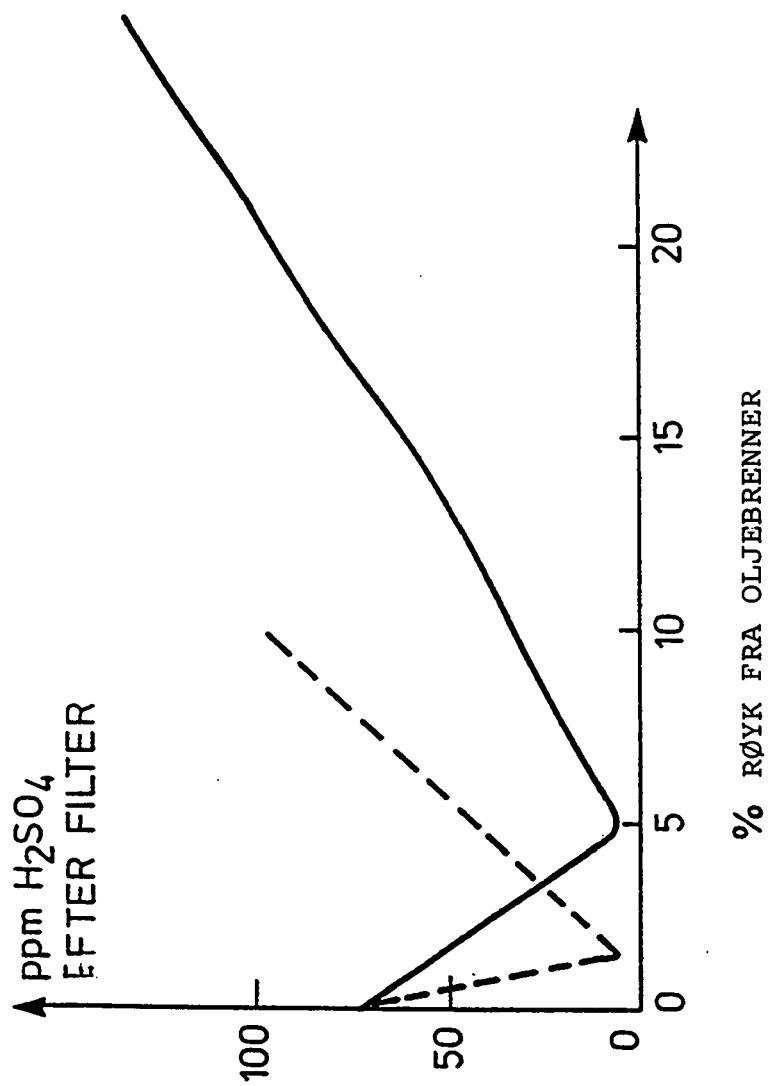


FIG.2

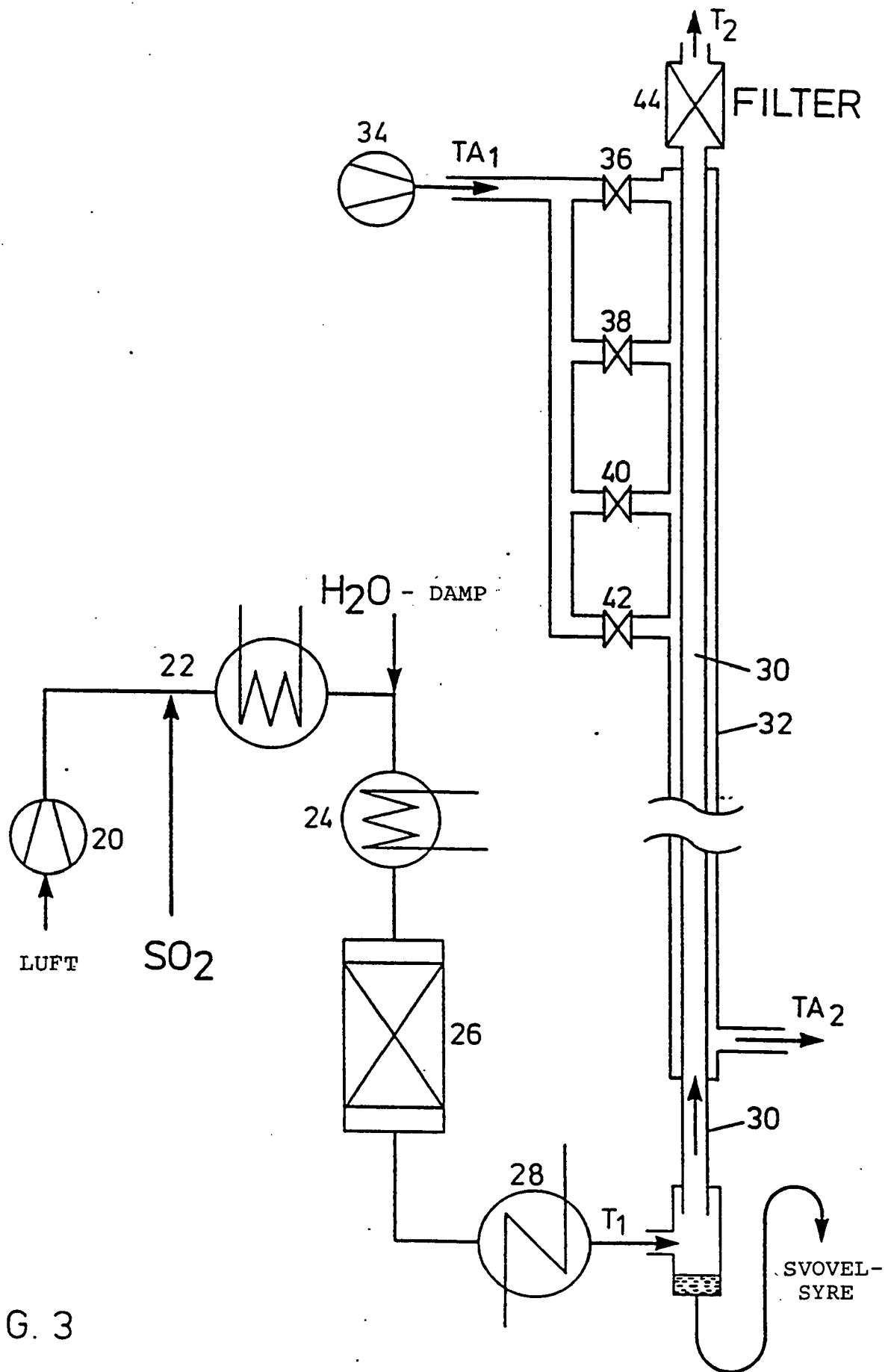


FIG. 3

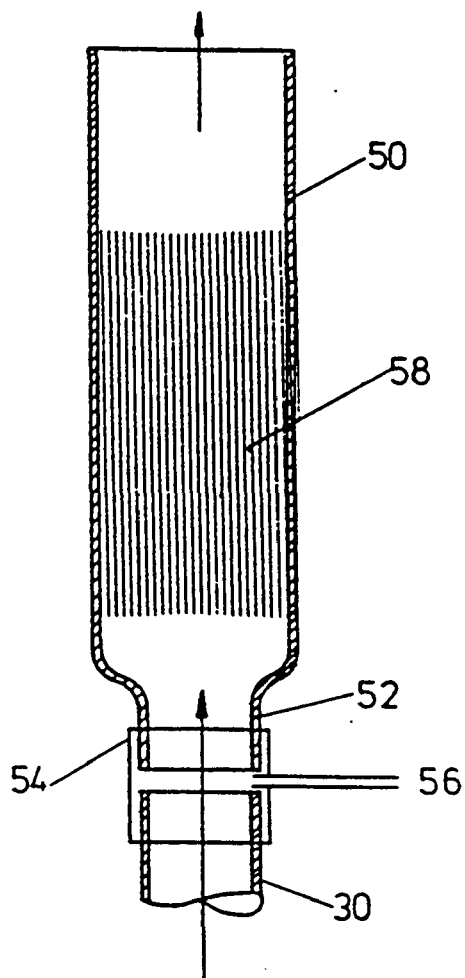


FIG. 4